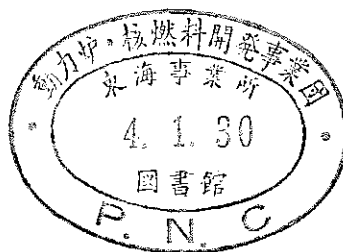


# 使用済燃料の溶解過程

Dissolution Performance of Spent Fuel

February 1979



動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

TOKAI WORKS

POWER REACTOR & NUCLEAR FUEL DEVELOPMENT CORPORATION

複製あるいは入手については、下記にお問い合わせください。

茨城県那珂郡東海村 〒319-11

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所技術部研究管理課 ☎ 東海(02928)2-1111 内線 238

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Enquiries about copyright and reproduction should be addressed to ;

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation,

Tokai, Ibaraki, Post No.319-11, Japan.

## 使用済燃料の溶解過程

## Dissolution Performance of Spent Fuel

実施責任者	権田浩三*
報告者	権田浩三*
	根本剛*
	芝原鉄朗*

期 間 1976年3月～1978年5月  
目 的 使用済燃料の溶解過程の考察  
要 旨

UO<sub>2</sub>ペレットの溶解初期時には、その形状が明確であるため、溶解速度が実測された例は多いが、剪断燃料はその形状が明確でないため溶解過程をシミュレーションした例はない。したがって、実際のプラントあるいは工場規模の溶解槽内での剪断燃料の溶解過程をシミュレーションすることは、溶解過程の把握ならびに安全運転維持のために必要である。

本報告は、未照射 UO<sub>2</sub> ペレットを使用して実験室的に溶解速度を求め、その測定結果を使用して、実際に小型試験設備のウラン試験時の溶解工程の未照射 UO<sub>2</sub> ペレットおよび未照射 JPDR 剪断 UO<sub>2</sub> ペレットについての溶解過程のシミュレーションを行ったものである。また、小型試験設備の溶解過程のモデルを再処理主工場におけるホット試験時の BWR および PWR 使用済燃料の溶解過程のシミュレーションに応用し、実際の溶解過程とシミュレーションとのよい一致を確認できた。

---

\* 再処理建設所工務部試験課

## Dissolution Performance of Spent Fuel

Kozo GONDA\*, Takeshi NEMOTO\* and Tetsuro SHIBAHARA\*

## Abstract

The initial surface state of  $UO_2$  pellet dissolution is simple enough to study the kinetics of dissolution. And so, many kinetic studies of  $UO_2$  pellet dissolution have been carried out and reported. To the contrary, the surface state of chopped fuel is very complicated. So the simulation study concerning the dissolution performance of spent fuel has not been established. The simulation study of dissolution performance of spent fuel in commercial scale plant is useful to understand dissolution performance and keep the safety of dissolution process.

In this report, dissolution rate of unirradiated  $UO_2$  pellet was measured and then dissolution performance of unirradiated  $UO_2$  pellet and JPDR chopped fuel were analyzed and simulated using the observed dissolution rates. Further the dissolution performance model was applied to simulate the dissolution performance of BWR and PWR spent fuels for hot test of PNC reprocessing plant. The practical dissolution performances agreed well with the simulation.

---

\* Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation,  
Tokai, Ibaraki, 319-11, Japan

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. UO <sub>2</sub> ペレットの溶解速度 .....	1
2.1 UO <sub>2</sub> ペレットの溶解初期表面積 .....	1
2.2 UO <sub>2</sub> ペレットの溶解速度 .....	3
3. 溶解過程のシミュレーション .....	9
3.1 UO <sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO <sub>2</sub> ペレットの溶解時表面積 .....	9
3.2 UO <sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO <sub>2</sub> ペレットの溶解過程シミュレーション .....	21
3.3 主工場の溶解過程シミュレーション .....	23
4. あとがき .....	27
5. 謝 辞 .....	27
6. 参考文献 .....	27

## 1. ま え が き

再処理工場運転員のための溶解工程考察<sup>(1)</sup>では、再処理小型試験設備での溶解工程の溶解曲線から得られた知見にもとづいて、経験的に溶解過程をモデル化し、溶解過程のシミュレーションを行った。

本報告では、前考察に用いた溶解過程モデルを一部修正し、議論を進めた。

一般に使用済燃料は、燃料の製造履歴（比重、焼結度）、炉内照射履歴（燃焼度）および再処理工場での機械処理条件（剪断）等による様々な条件が重なり合い、一概に溶解特性を予測することは困難であるが、製造履歴、炉内照射履歴を与えられた燃料の物理特性（例えば、溶解速度、溶解時の形状崩壊等）として、一括すれば、使用済燃料の溶解特性は、再処理工場での機械処理条件のみによる因子で議論が進められると考えられる。

本報告は、溶解工程についてのもっとも基本的な理解の仕方であり、実際に得られた溶解曲線から、次の溶解工程の推察を行なうのに、実用的見地から充分満足のいくシミュレーション結果が得られた。したがって、再処理工場での機械処理装置および溶解装置の特性に関する知見を積み重ねて、本報告の方法をさらに修正すれば統計的にかなり精度のよい溶解過程の推察ができ、かつ実用的に充分満足されるシミュレーションができると考えられる。

## 2. UO<sub>2</sub>ペレットの溶解速度

### 2.1 UO<sub>2</sub>ペレットの溶解初期表面積

UO<sub>2</sub>ペレットの溶解速度は、一定温度における単位時間あたり、単位表面積についてのウラン溶解量で定義されるため、UO<sub>2</sub>ペレットの溶解速度を正しく求めるのに、溶解時のUO<sub>2</sub>ペレットの平均表面積を知っておかねばならない。

本報告での実験では、あらかじめUO<sub>2</sub>ペレットの溶解初期表面積遷移を知るために、表一1で示すUO<sub>2</sub>ペレットを用いて次の実験を行なった。

表一1 UO<sub>2</sub>ペレット仕様

試験試料	製造元	<sup>235</sup> U組成 (%)	比重	組成
P - 1, 2	GULF NUCLEAR FUELS COMP.	0.20	9.92±0.14	UO <sub>2.003</sub>
J - 1, 2	CERCA	0.35	-	UO <sub>2.002</sub>

5, 6および7N HNO<sub>3</sub> 100mlをあらかじめそれぞれ80℃に加温維持し, 表面積がわかっているUO<sub>2</sub>ペレット2個(28210Umg)をわずかに溶解して, UO<sub>2</sub>ペレットの重量減から, ウランの溶解量を求め, UO<sub>2</sub>ペレットの表面積変化はないものと仮定し, ウランの溶解量と溶解時間から, 80℃における5, 6および7N HNO<sub>3</sub> 中でのUO<sub>2</sub>ペレットの溶解速度を求めた。

一方, 5, 6および7N HNO<sub>3</sub> 100ml中にあらかじめ, それぞれ3個(42310Umg)のUO<sub>2</sub>ペレットを入れ, 約1℃/minの昇温条件で, 室温から85℃まで昇温加熱し, UO<sub>2</sub>ペレットを溶解して各中間温度での, UO<sub>2</sub>ペレット溶解量を分析して求めた。

以下の式にしたがって, 80℃における溶解速度kと溶解表面積Sとの積kSを, それぞれの実験でのUO<sub>2</sub>ペレットの溶解濃度増加分と溶解液の容積および80℃での平均溶解時間から求め, さきの実験で求めた80℃での溶解速度kをもちいて, 表面積遷移S/S<sub>0</sub>を算出した。

$$S / S_0 = kS / kS_0 = (\Delta C \cdot V / \Delta t) / kS_0 \dots\dots\dots(1)$$

- S<sub>0</sub> : 初期表面積〔cm<sup>2</sup>〕
- S : 溶解時の表面積〔cm<sup>2</sup>〕
- k : 溶解速度〔Umg/cm<sup>2</sup>・min〕
- ΔC : 溶解液中のウラン濃度増加分〔Umg/ml〕
- V : 溶解液の全容積〔ml〕
- Δt : 一定温度とみなすことのできる溶解時間〔min〕

以上の実験と計算の結果を, 表-2にまとめ, 図-1に示した。

表-2 80℃の溶解速度kおよび室温~80℃でのUO<sub>2</sub>ペレットの表面積遷移S/S<sub>0</sub>

硝酸濃度 (N)	装荷ウラン量 U <sub>0</sub> (Umg)	溶解時間 t (min)	溶解温度 T (℃)	初期表面積 S <sub>0</sub> (cm <sup>2</sup> )	溶解量 kS <sub>0</sub> (Umg/min)	溶解速度 k (Umg/cm <sup>2</sup> ・min)
5	28,210	10	80	15.4	86.2	5.6
6	28,210	10	80	15.3	116.3	7.6
7	-	-	-	-	-	7.0*

硝酸濃度 (N)	装荷ウラン量 U <sub>0</sub> (Umg)	溶解時間 t (min)	溶解温度 T (℃)	初期表面積 S <sub>0</sub> (cm <sup>2</sup> )	溶解量 kS (Umg/min)	溶解率 (%)	表面積遷移 S/S <sub>0</sub> (-)
5	42,310	10	80	22.8	268	12	2.1
6	42,310	10	80	22.9	486	21	2.8
7	42,310	10	80	22.8	443	23	2.7

\* 文献値<sup>(2)</sup>

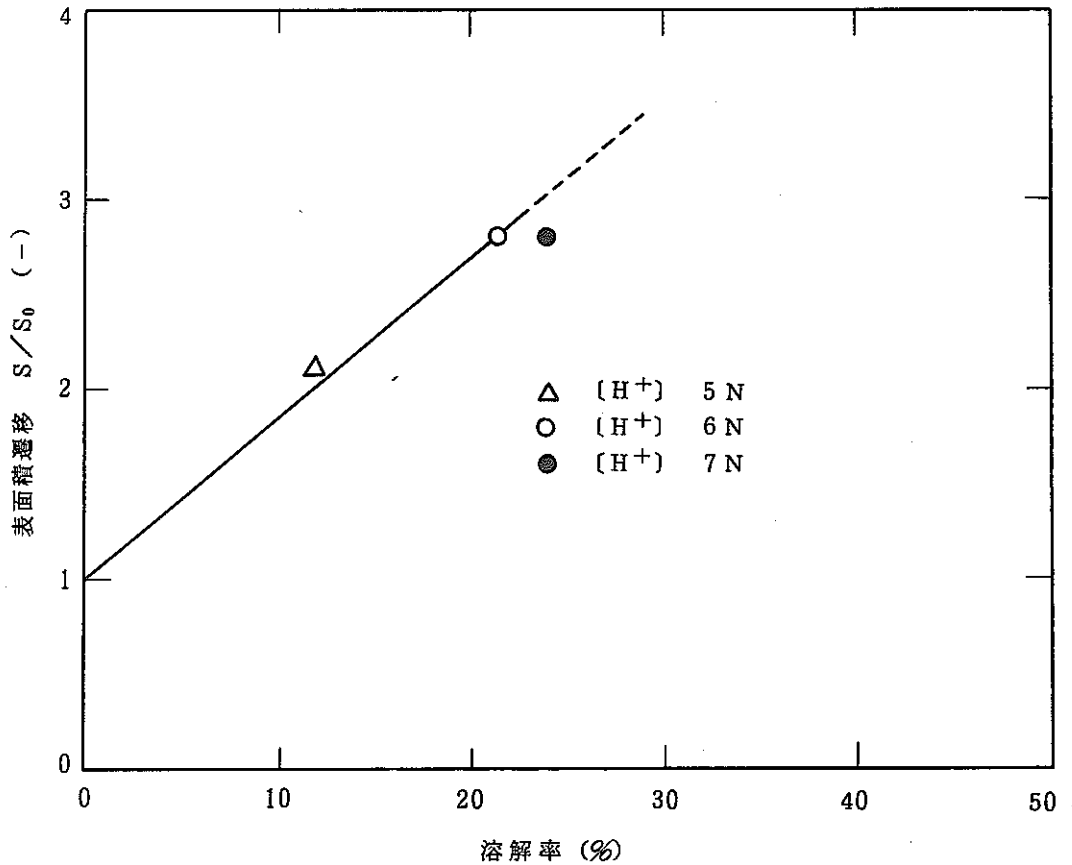


図-1 溶解時の $UO_2$ ペレットの表面積遷移

図-1 から、 $UO_2$ ペレットの溶解率が20%程度までの範囲で、 $UO_2$ ペレットの表面積遷移と溶解率との関係が、ほぼ直線関係にあることが確認された。

## 2.2 $UO_2$ ペレットの溶解速度

本報告での溶解速度の測定は、ウォーターバス内の三角フラスコ(300mℓ容積)中で、連続昇温下での連続溶解にて行なった。昇温条件は、ほぼ $1^{\circ}C/min$ に調整した。

本報告での $UO_2$ ペレットの溶解速度は、溶解率から得られたペレットの表面積遷移を用いて、補正を行なった値である。その結果を表-3, 4, 5 および図-2 に示す。

図-3 に硝酸濃度をパラメーターに、ウラン濃度が溶解速度におよぼす影響をグラフにして示した。

Taylor<sup>(3)</sup>は、溶解したウランが $UO_2$ の溶解に自触媒効果をもたらすと述べているが、図-3 から、本報告の $UO_2$ ペレットの溶解速度も、溶解ウラン濃度が低い範囲では、溶解ウラン濃度の影響を受けていることが観察された。



表-3 5N HNO<sub>3</sub> 中の UO<sub>2</sub> の溶解速度

経過時間 (min)	溶解温度 (°C)	ウランの 総溶解量 (Umg/ml)	ウランの 部分溶解量 (Umg)	溶解率 (%)	UO <sub>2</sub> ペレット 表面積 (cm <sup>2</sup> )	溶解速度 (Umg/cm <sup>2</sup> ・min)
0	29.5					
1	30.5					
3	33.8	0.18	18	0.1	2279	0.1
5	36.0					
8	38.4					
10	40.5					
12	42.5					
15	44.7	0.72	53	0.2	2279	0.3
17	46.8					
20	49.9					
23	51.7					
24	54.2	4.10	322	0.8	2416	1.3
26	56.7					
28	59.2					
30	60.8					
33	62.8					
35	64.5	13.47	874	2.6	27.80	3.1
37	67.2					
40	70.9					
43	71.4					
45	73.9	30.60	1548	5.8	34.19	4.5
47	75.1					
50	77.8					
53	80.0					
54	82.0	61.08	2682	11.3	45.58	5.9
56	82.2					
58	82.2					
60	81.9					

表-4 6N HNO<sub>3</sub> 中の UO<sub>2</sub> の溶解速度

経過時間 (min)	溶解温度 (°C)	ウランの 総溶解量 (Umg/mL)	ウランの 部分溶解量 (Umg)	溶解率 (%)	UO <sub>2</sub> ペレット 表面積 (cm <sup>2</sup> )	溶解速度 (Umg/cm <sup>2</sup> ・min)
0	29.8					
2	31.2					
4	34.1					
6	37.2	0.42	42	0.1	22.90	0.2
8	39.4					
10	40.8					
12	42.0					
14	44.3					
16	45.7	1.54	109	0.3	23.36	0.5
18	47.7					
20	50.1					
21.5	52.0					
23.5	54.3					
25.5	56.5	7.26	549	1.4	25.42	2.2
28.5	60.5					
30	61.8					
31	62.1					
33	62.7					
35	64.6	21.67	1,337	4.2	31.60	4.2
37	66.4					
40	69.1					
43	72.3					
45	74.9	53.71	2,905	10.2	43.97	6.6
47	78.0					
50	80.4					
53	83.0					
57	82.0	106.59	4,864	20.2	65.58	7.5
60	81.0					

表-5 7N HNO<sub>3</sub> 中の UO<sub>2</sub> の溶解速度

経過時間 (min)	溶解温度 (°C)	ウランの 総溶解量 (Umg/ml)	ウランの 部分溶解量 (Umg)	溶解率 (%)	UO <sub>2</sub> ペレット 表面積 (cm <sup>2</sup> )	溶解速度 (Umg/cm <sup>2</sup> ・min)
0	28.5					
3	32.0					
5	35.3	0.60	60	0.1	2281	0.3
7	39.2					
10	42.0					
13	43.7					
15	45.5					
17	47.5	2.58	193	0.5	2370	0.8
20	50.2					
23	53.9					
25	56.4					
27	58.4	9.04	615	1.8	2626	2.3
30	60.9					
33	62.5					
35	64.5					
37	65.9	31.26	2070	6.1	3507	5.9
40	67.9					
43	71.7					
45	75.7					
47	78.0	76.56	4115	14.5	5328	7.7
50	79.8					
54	81.5					
58	80.5	127.55	4428	23.6	70.13	(6.3)
60	80.0					

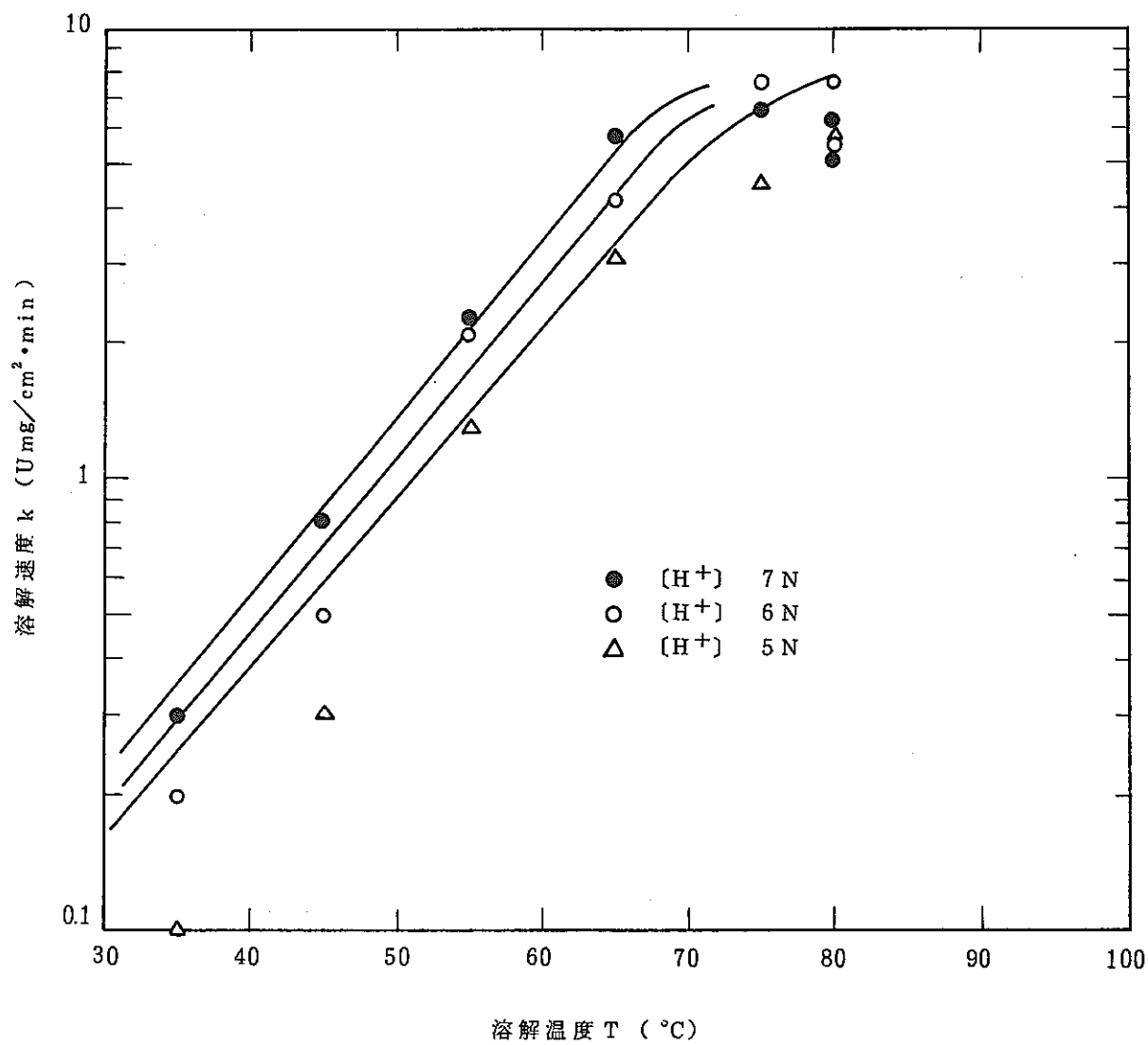


図-2 溶解速度  $k$  と溶解温度  $T$  の関係

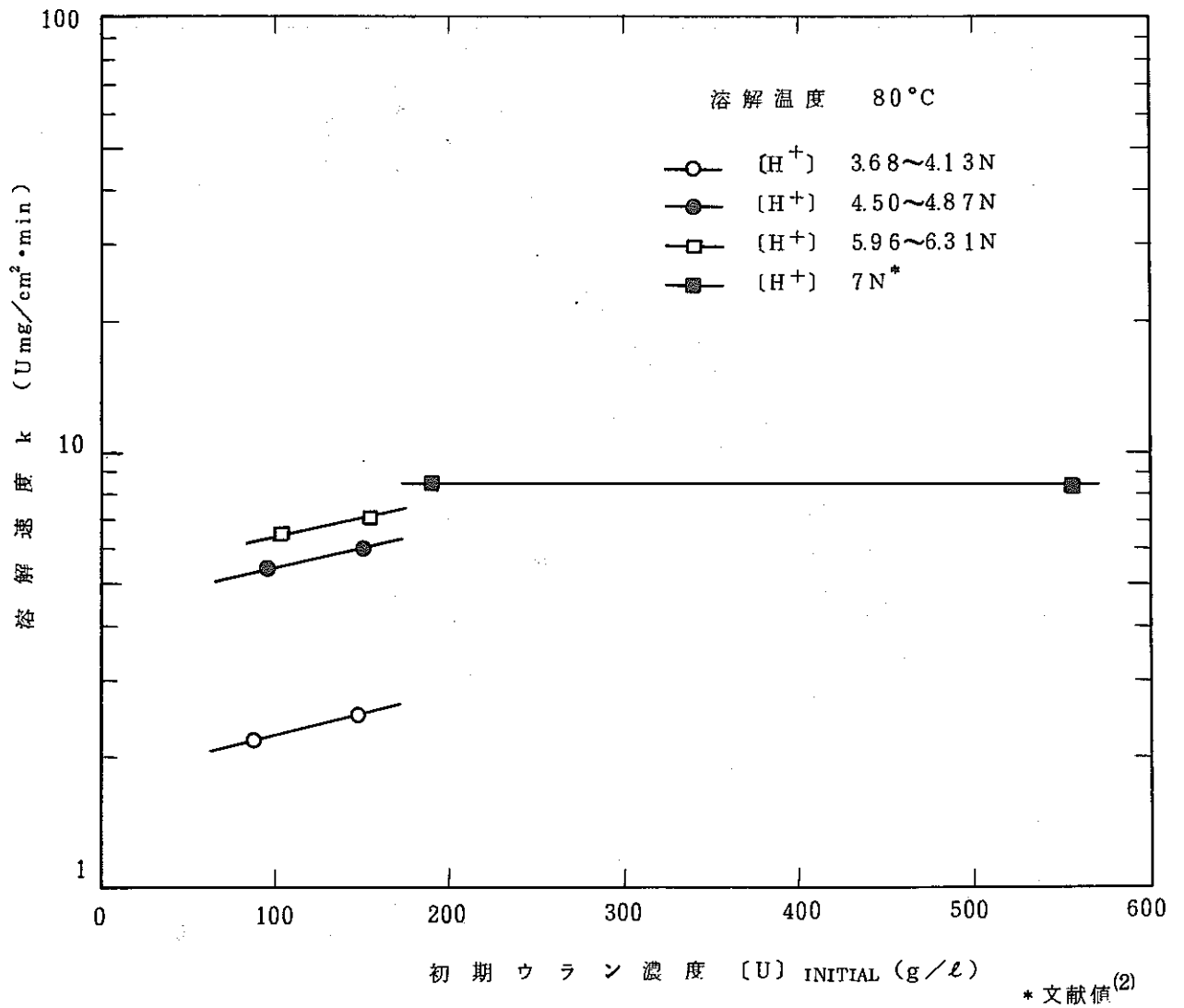


図-3 溶解ウラン濃度による溶解速度kの影響

### 3. 溶解過程のシミュレーション

#### 3.1 UO<sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO<sub>2</sub> ペレットの溶解時表面積

さきの、ウラン試験<sup>(4)</sup>で UO<sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO<sub>2</sub> ペレットの溶解試験では、UO<sub>2</sub> ペレットの溶解および剪断 UO<sub>2</sub> ペレットの溶解を図-4 に示す装置を用いてそれぞれ 2 回行なった。UO<sub>2</sub> ペレットの溶解曲線 P-1, P-2 を図-5, 6 の実線で示す。

溶解したウランが UO<sub>2</sub> の溶解に自触媒効果をもたらすことを考慮した(2)式にしたがって、溶解曲線 P-1, P-2 から UO<sub>2</sub> ペレットについて、溶解率に対する表面積遷移を求め、図-7 に示した。

$$S/S_0 = \alpha \cdot k_t \cdot S / k_0 \cdot S_0 = (\Delta U / \Delta t) / k_0 \cdot S_0 \text{ ----- (2)}$$

$\alpha$  : 溶解したウランによる UO<sub>2</sub> の溶解速度についての補正係数 [ - ]

$k_t$  : 時刻  $t = t$  での溶解速度 [  $\text{Umg}/\text{cm}^2 \cdot \text{min}$  ]

$k_0$  : 時刻  $t = 0$  での溶解速度 [  $\text{Umg}/\text{cm}^2 \cdot \text{min}$  ]

$\Delta U$  :  $\Delta t$  の間のウラン溶解量の増加分 [  $\text{Umg}$  ]

$\Delta t$  :  $k_t, S, [H^+]$  が一定とみなせる時間巾 [  $\text{min}$  ]

$[H^+]$  : 溶解液中の遊離硝酸濃度 [  $\text{N}$  ]

なお、表面積遷移を求めるにあたり、溶解速度は実験値を溶解温度と溶解液中の遊離硝酸濃度の関数として表わした近似式による計算値を使用した。計算値と実験値の対応を図-8 に示す。

図-9, 10 中の実線で示される剪断 UO<sub>2</sub> ペレットの溶解曲線 J-1, J-2 から、(2)式にしたがって溶解率に対する表面積をもとめ、図-11, 12 に示した。図-11, 12 で示されるように、剪断 UO<sub>2</sub> ペレットの溶解については、剪断過程によって粉末化された UO<sub>2</sub> の溶解に対する影響が、初期における表面積の異常な大きさと、溶解初期における表面積の急激な減少に現われている。したがって、J-1, J-2 については UO<sub>2</sub> ペレットとしての形状を残した部分と、粉末化された部分とに区分しなければならない。図-11, 12 中の溶解率に対する表面積の関係が直線的である部分は粉末化された剪断 UO<sub>2</sub> の溶解挙動を示していると考えられる。したがって、溶解率に対する表面積の関係から、粉末化した UO<sub>2</sub> とペレットとしての形状を残した UO<sub>2</sub> の表面積変化を図-11, 12 の破線で示すごとく配分した。ここで UO<sub>2</sub> ペレットとしての表面積は変曲点以降の表面積をそのままちい、変曲点以前については、図-7 の P-1, P-2 についての溶解率に対する表面積の立上がり変化の関係を利用した。

以上のようにして、求めた UO<sub>2</sub> ペレットの表面積を全表面積から差引いたのが、粉末化された UO<sub>2</sub> の表面積である。さらに、粉末化された UO<sub>2</sub> が全 UO<sub>2</sub> に占める割合を 30% と仮定して、粉末化された UO<sub>2</sub> ペレットの溶解率に対する表面積遷移を求めて図-13 に示した。

Finney<sup>(5)</sup>らは燃料の剪断時の破碎粒子の粒径分布について表-6に示す実験結果を報告している。小型試験設備で溶解した燃料の剪断長さは3cmであり、粉末化されたUO<sub>2</sub>の全UO<sub>2</sub>に占める割合を30%と仮定するとJ-1およびJ-2で粉末化UO<sub>2</sub>の挙動を示すのは表-6が示すステンレススチール304被覆燃料を1インチで剪断した場合に生じた約1000μ以下の破碎粒子と推定される。

表-6 剪断燃料片の切り口から外部へ出る破碎粒子の粒径分布

被 覆 材	ジルカロイ-2 <sup>*1</sup>		ステンレススチール-304 <sup>*2</sup>		
	剪断長さ(インチ)		0.5	1.0	1.5
粒 径 (μ)	破 碎 粒 子 量 <sup>*3</sup> (wt%)				
< 9520	45.9 ~ 63.0		84.5	35.4	17.7
< 4760	45.9 ~ 62.7		84.2	35.4	17.7
< 2000	44.5 ~ 61.8		84.0	35.0	17.4
< 1190	41.8 ~ 57.7		81.6	33.5	16.4
< 590	34.8 ~ 47.2		75.4	29.8	15.1
< 297	26.8 ~ 36.4		62.7	23.9	12.4
< 149	18.2 ~ 25.0		47.4	17.8	9.5
< 74	11.0 ~ 15.5		31.9	11.7	6.3
< 44	8.0 ~ 10.9		22.4	7.4	4.5

\*<sub>1</sub> 外径 0.439インチ(11.15 mm), 肉厚 0.032インチ(0.81 mm)

\*<sub>2</sub> 外径 0.5 インチ(12.7 mm), 肉厚 0.035インチ(0.89 mm)

剪断燃料片の切り口から外部へ出る破碎粒子量(g)

$$*_{3} \text{ 破碎粒子量 (wt \%)} = \frac{\text{剪断燃料片の切り口から外部へ出る破碎粒子量(g)}}{\text{燃料集合体中の燃料装荷量(g)}} \times 100$$

溶解率と表面積遷移S/S<sub>0</sub>の関係は、さきにTaylorら<sup>(3)</sup>が求めた関係で、S/S<sub>0</sub>のピーク値が溶解率20%であり、本報告の実験結果はそれにほぼ一致している。

なお、今回用いた80℃での溶解速度は、Uriate<sup>(2)</sup>らが沸騰状態で測定した溶解速度とほぼ一致している。

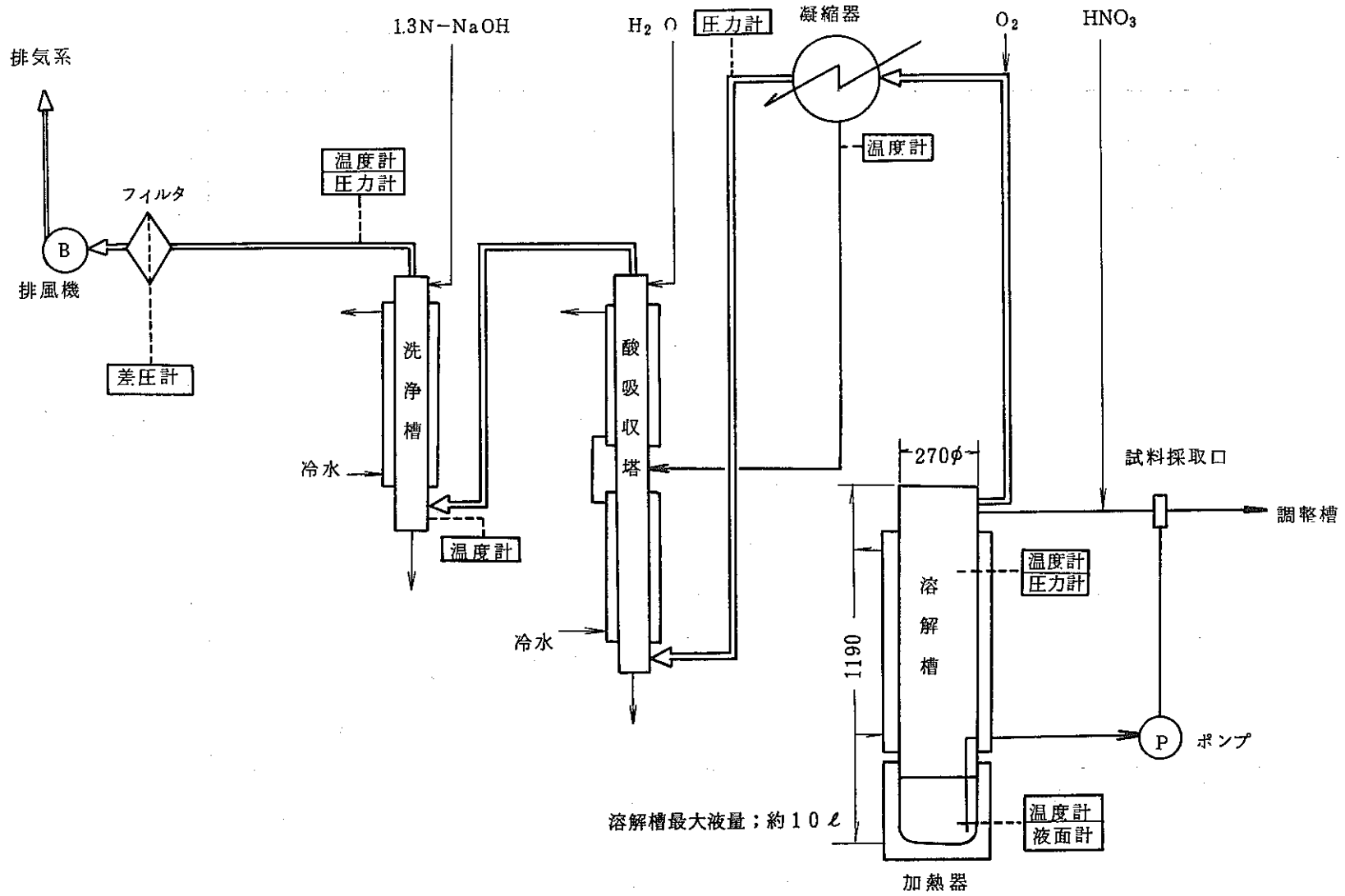


図-4 小型試験設備 (OTL) 溶解工程フローシート



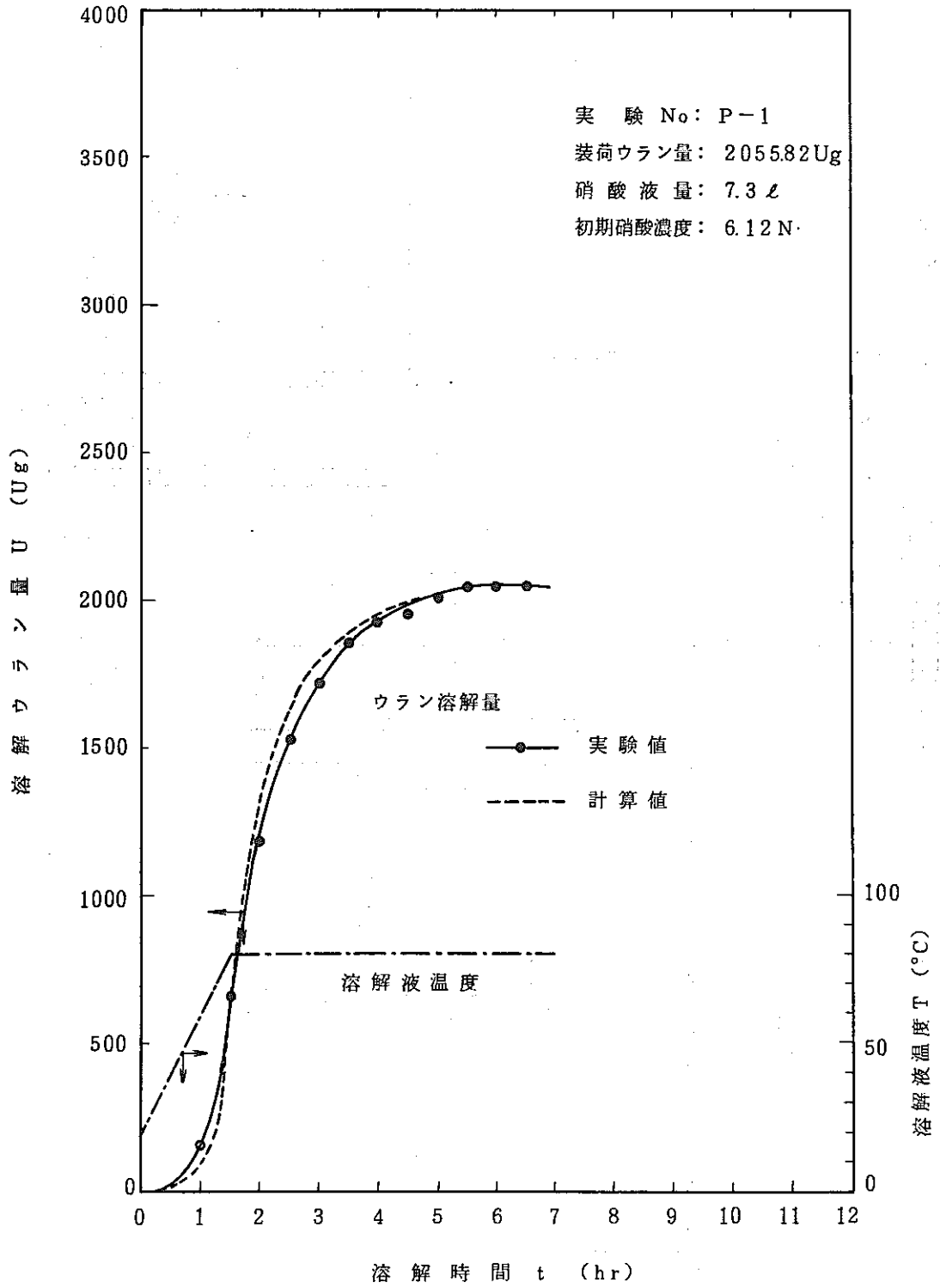


図-5 UO<sub>2</sub>ペレット溶解曲線 (P-1)

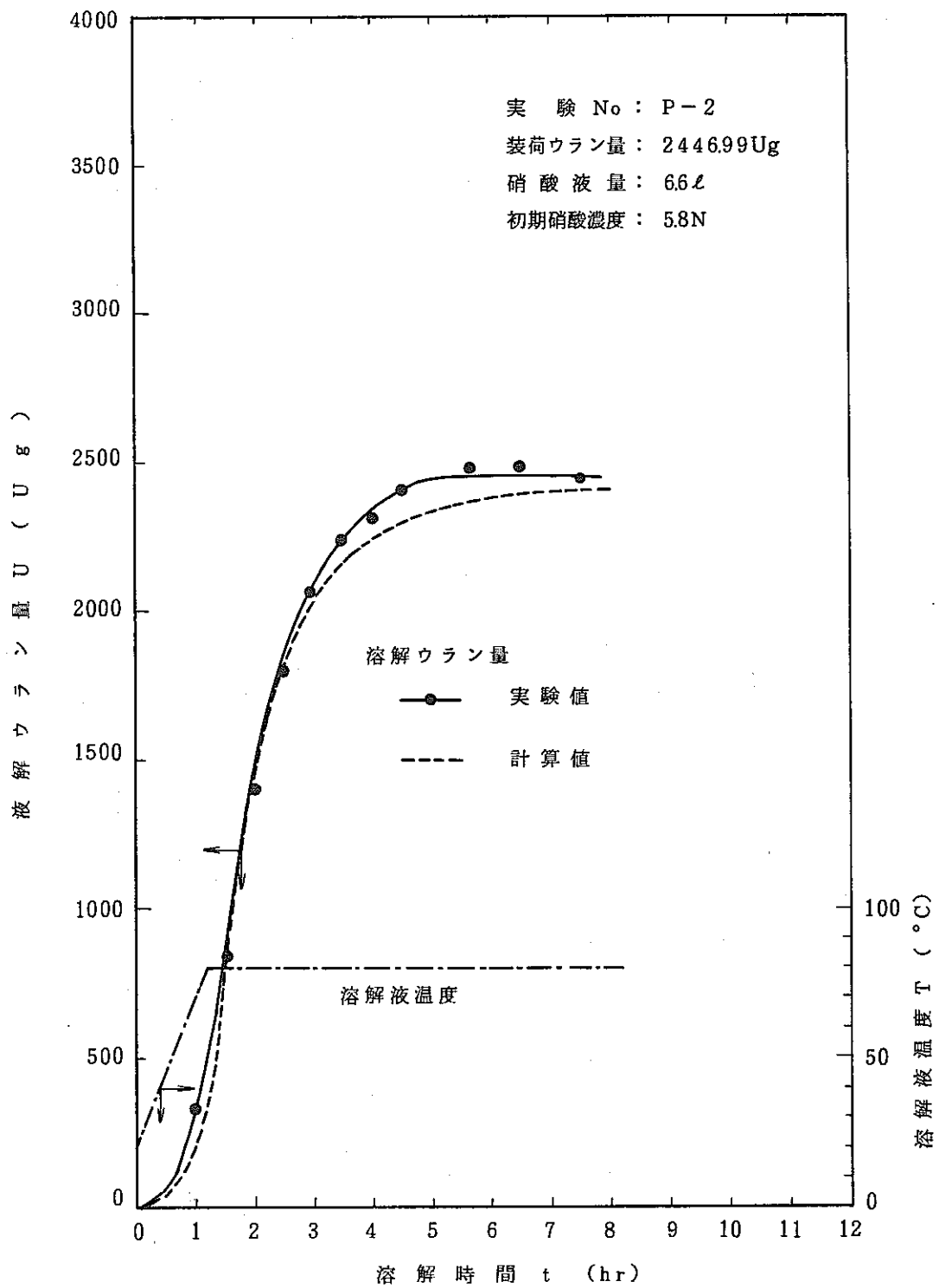


図-6 UO<sub>2</sub>ペレット溶解曲線 (P-2)

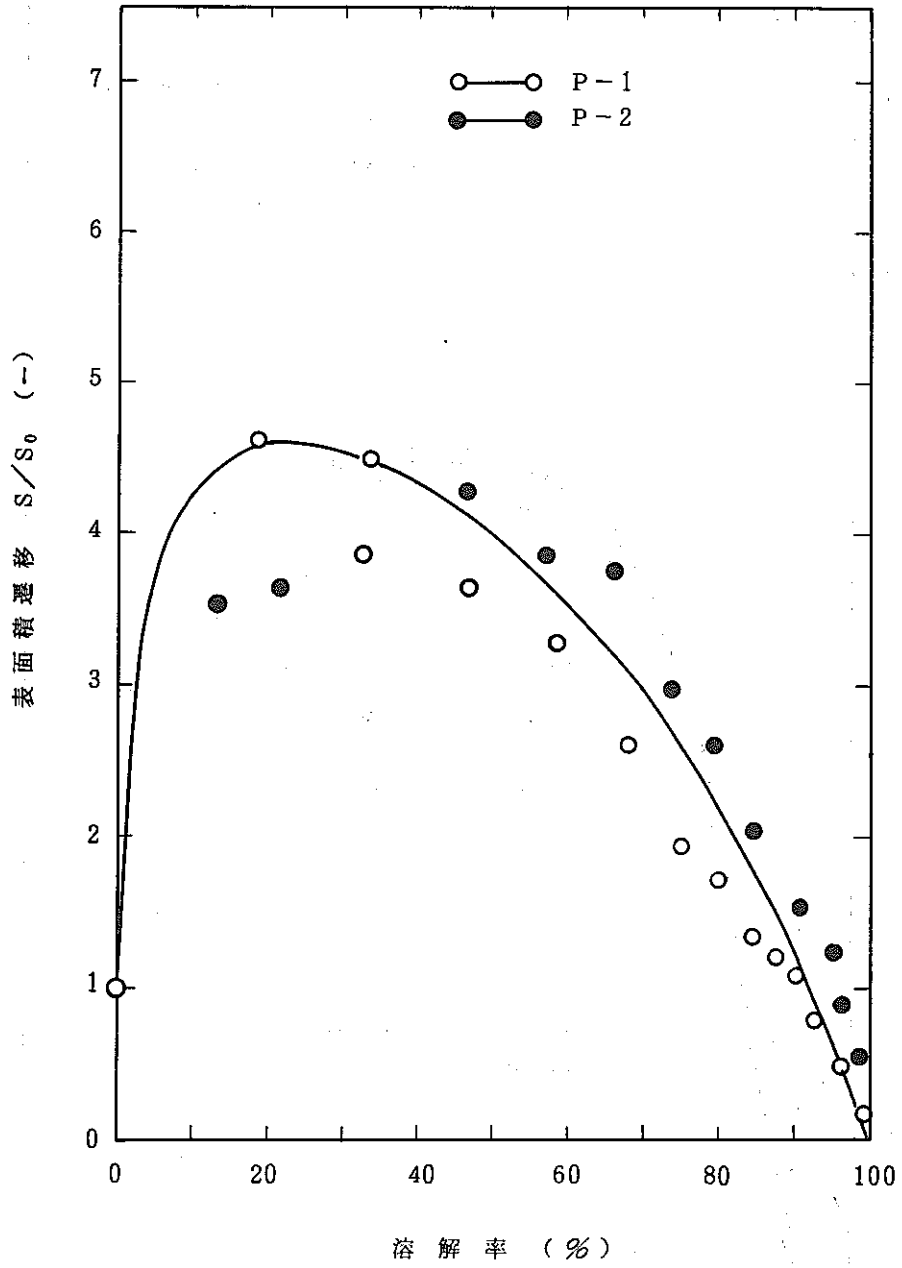
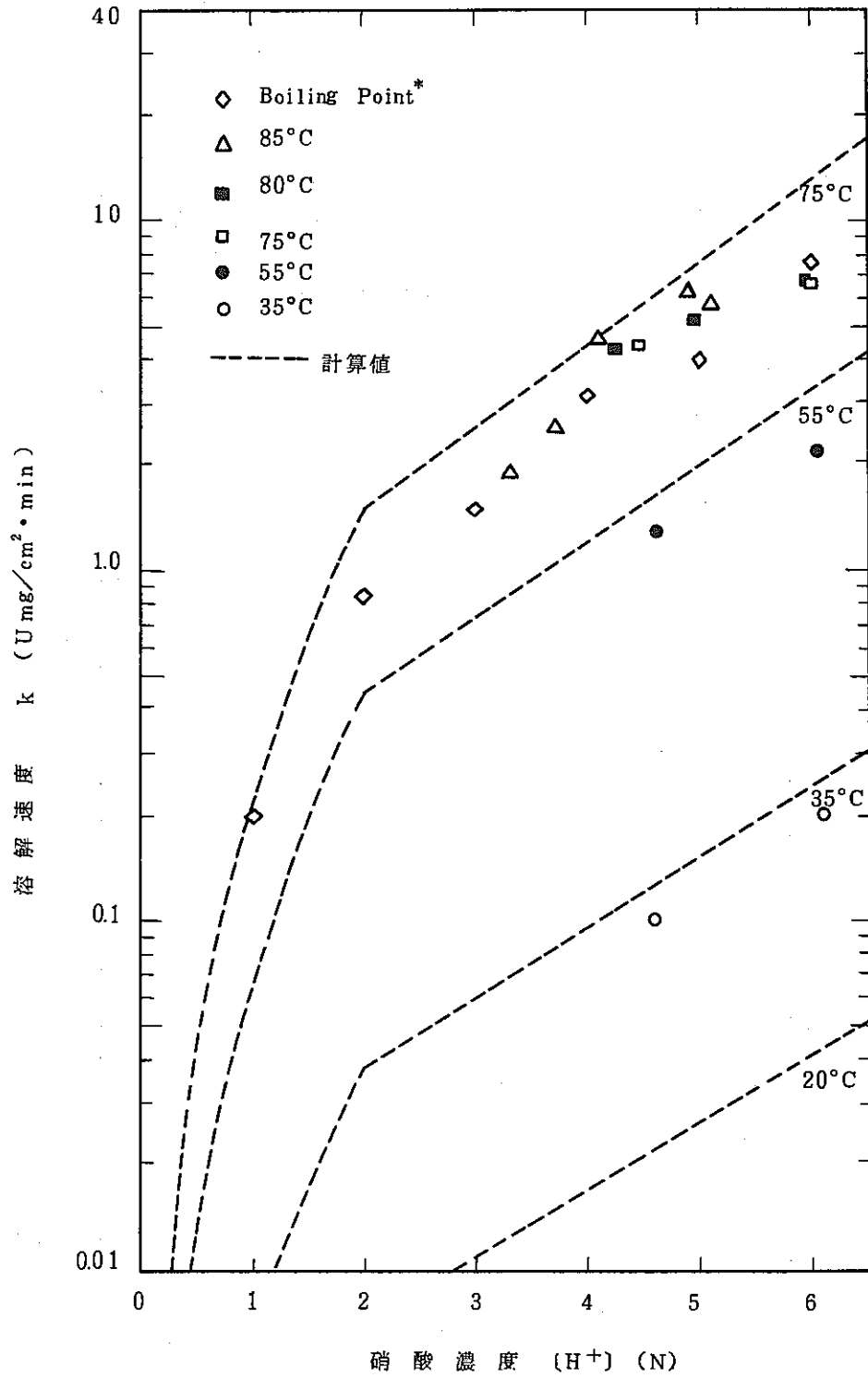


図-7  $UO_2$  ペレットの表面積遷移  $S/S_0$  と溶解率



\* 文献値<sup>(3)</sup>

図-8 溶解速度 k と硝酸濃度 [H<sup>+</sup>] の関係

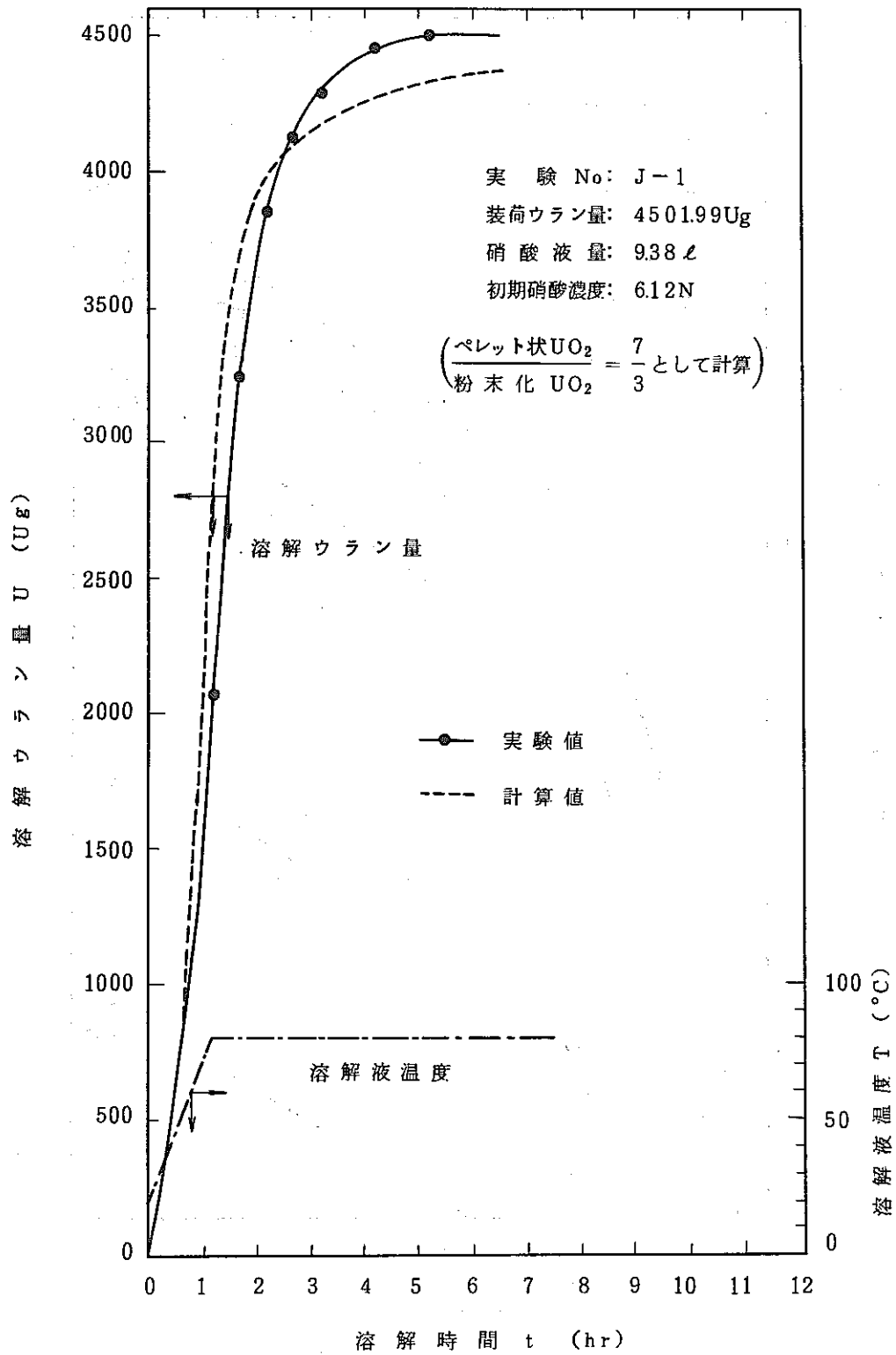


図-9 剪断  $UO_2$  ペレットの溶解曲線 (J-1)

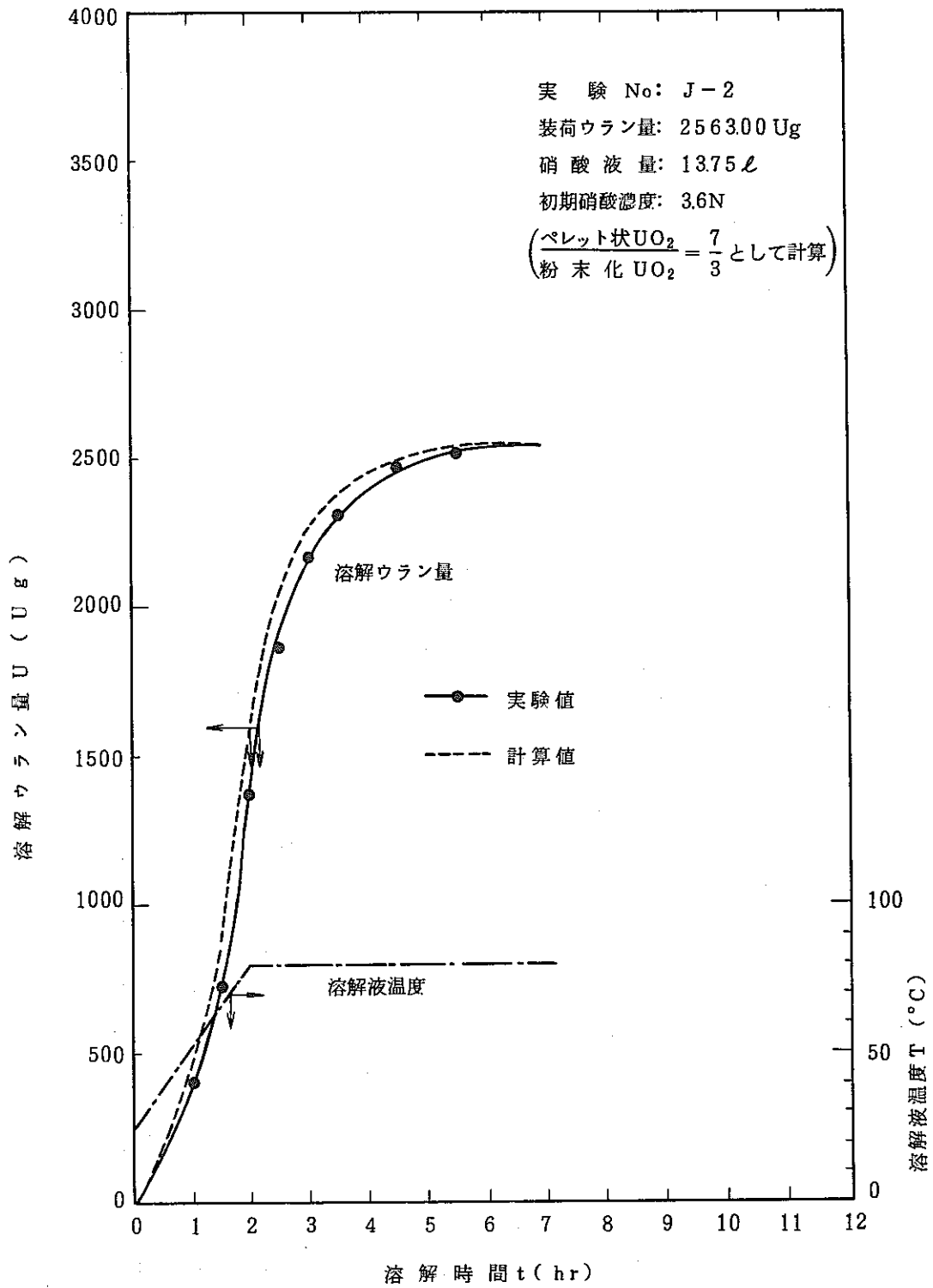


図-10 剪断UO<sub>2</sub>ペレットの溶解曲線 (J-2)

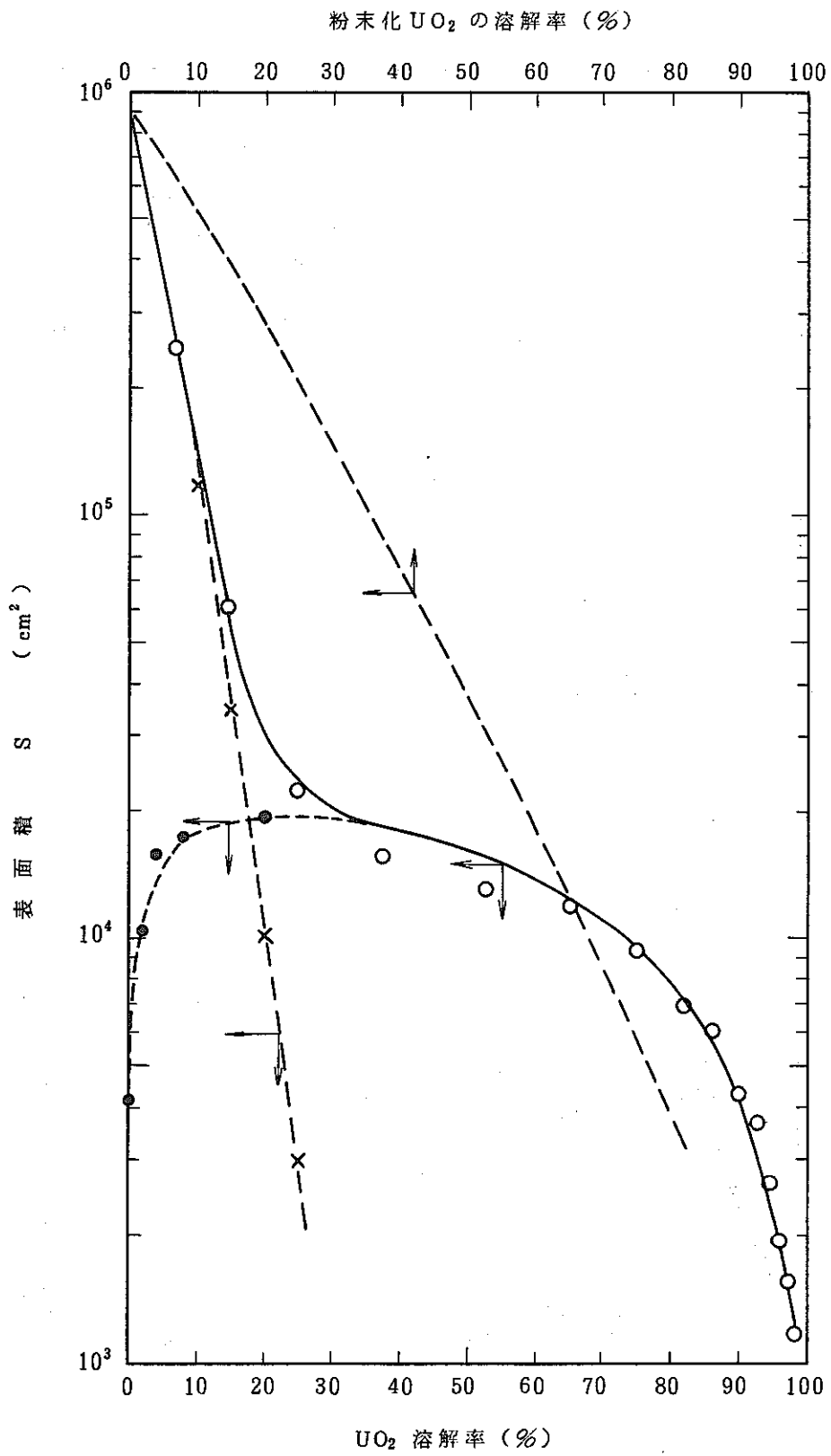


図-11 剪断  $UO_2$  ペレット溶解試験時 (J-1) の表面積  $S$  の遷移

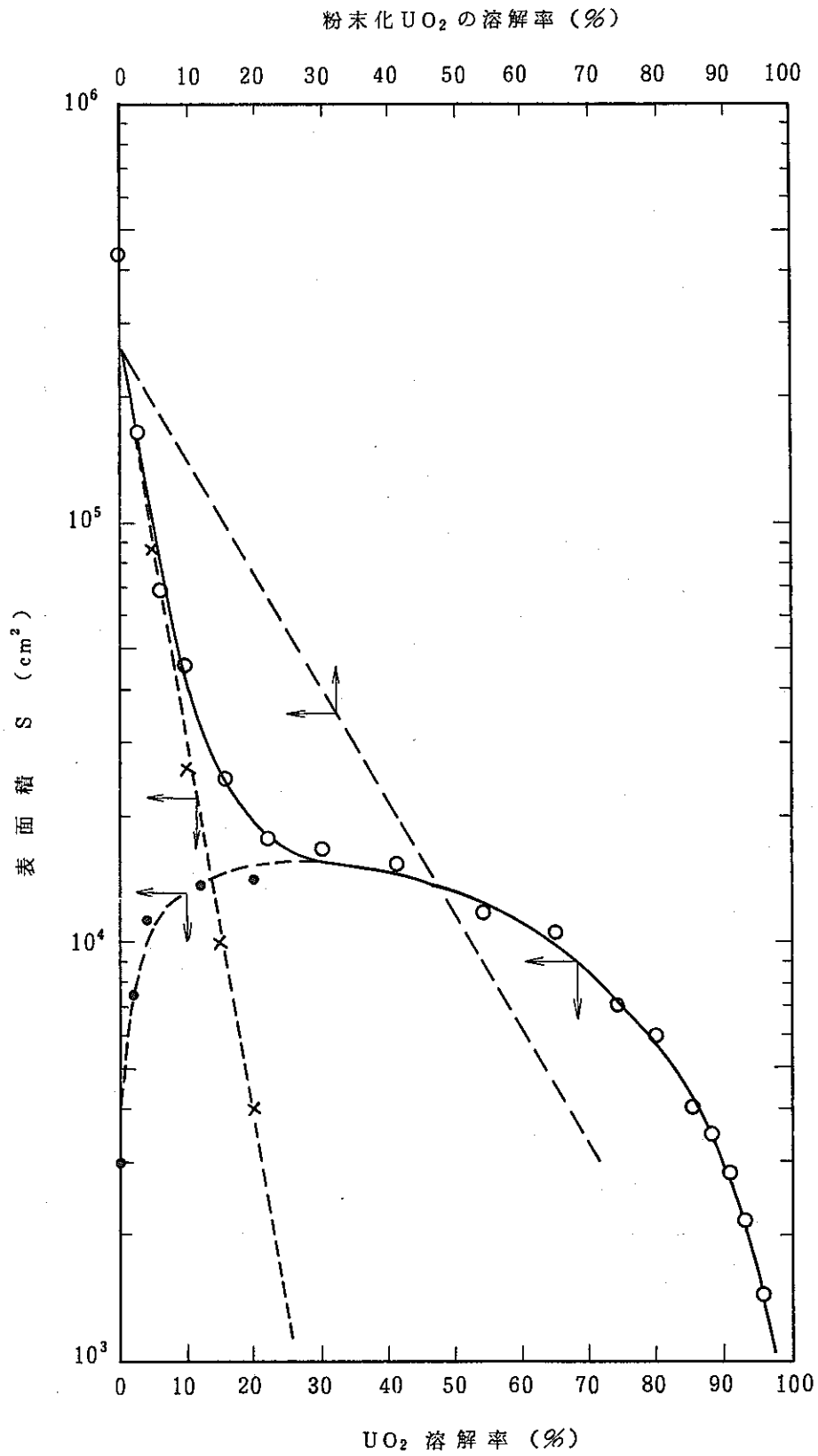


図-12 剪断  $UO_2$  ペレット溶解試験時 (J-2) の表面積  $S$  の遷移



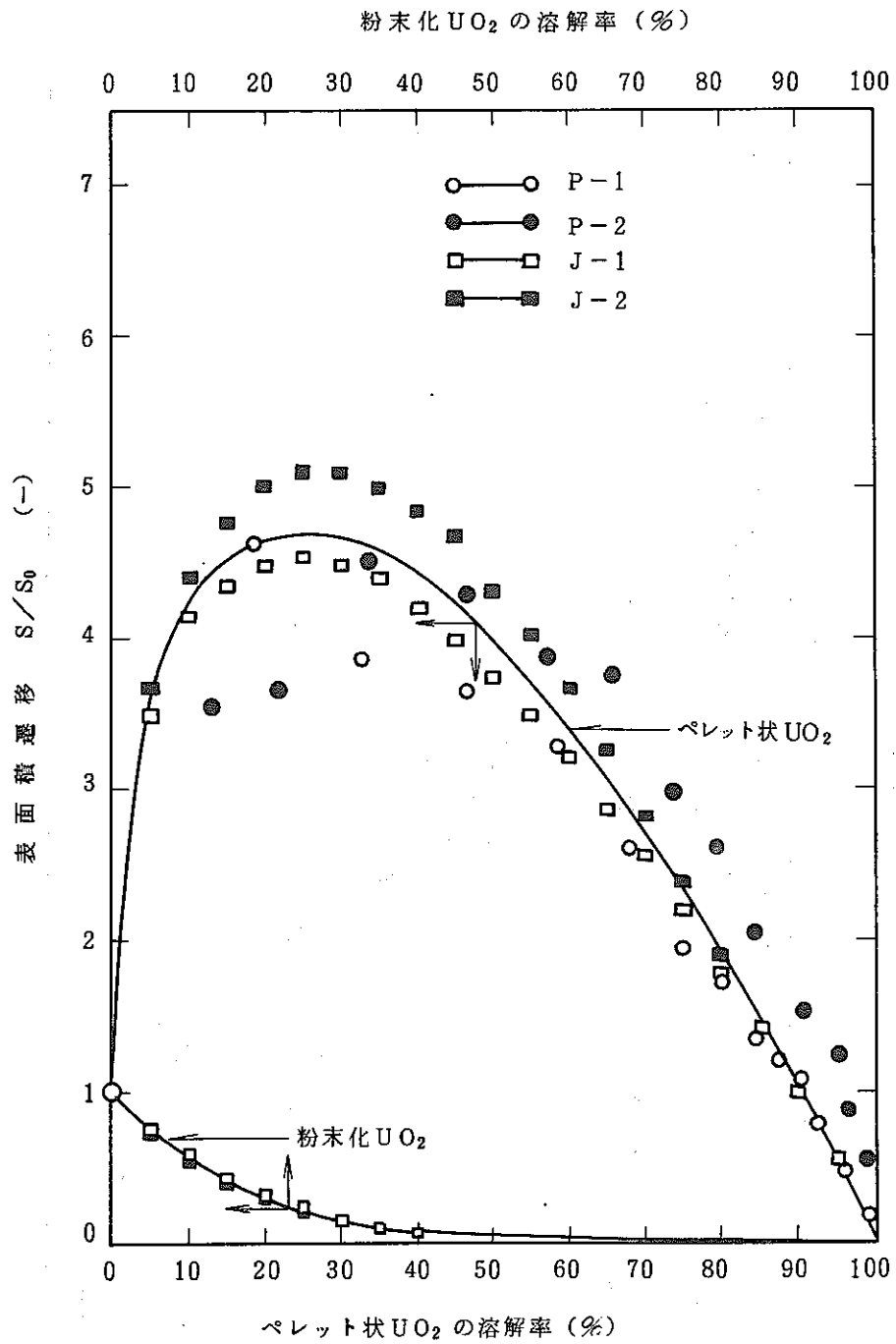


図-13 剪断UO<sub>2</sub>ペレット溶解試験時(J-1, J-2)の粉末化UO<sub>2</sub>およびペレット状UO<sub>2</sub>の表面積遷移  $S/S_0$

### 3.2 UO<sub>2</sub> ペレットおよび UO<sub>2</sub> ペレットの溶解過程シミュレーション

UO<sub>2</sub> の溶解過程は(3)式および(4)式による計算によって、求めることができる。

$$U = \Delta U_1 + \Delta U_2 + \Delta U_3 + \dots + \Delta U_i + \dots \quad \dots\dots(3)$$

$$\Delta U_i = \alpha \cdot k \cdot (S_{PL} + S_{PW}) \int_{t_i}^{t_{i+1}} dt \quad \dots\dots(4)$$

- ただし、 $\alpha = \alpha ([U])$  〔 - 〕
- $k = k (T, [H^+])$  〔 Umg/cm<sup>2</sup>・min 〕
- $S = S (W / W_0)$  〔 cm<sup>2</sup> 〕
- $S_{PL}$  : ペレット状 UO<sub>2</sub> の表面積 〔 cm<sup>2</sup> 〕
- $S_{PW}$  : 粉末化 UO<sub>2</sub> の表面積 〔 cm<sup>2</sup> 〕
- $[U]$  : 溶解ウラン濃度 〔 Ug/ℓ 〕
- $U$  : 溶解ウラン量 〔 Ug 〕
- $W$  : 溶解 UO<sub>2</sub> 量 〔 g 〕
- $W_0$  : 装荷 UO<sub>2</sub> 量 〔 g 〕
- $T$  : 溶解温度 〔 °C 〕
- $t_i \sim t_{i+1}$  :  $\alpha, k, S, T, [U], [H^+], W/W_0$  〔 min 〕  
を一定とみなすことができる時間中

したがって、あらかじめ UO<sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO<sub>2</sub> ペレットについて、初期表面積および表面積遷移、溶解速度、UO<sub>2</sub> の装荷量、溶解したウランの自触媒効果、溶解温度条件、溶解液の体積および硝酸濃度変化が与えられれば、それぞれの溶解過程を計算することが出来る。なお、UO<sub>2</sub> ペレット溶解時の UO<sub>2</sub> 1 モル当りの硝酸の消費量は 2.71 モルを用いた。(4) (3)式および(4)式をもとに図-14 のフローチャートで表わされる溶解工程解析コード DISSO を作成し、UO<sub>2</sub> ペレットおよび剪断 UO<sub>2</sub> ペレットについてシミュレーションを行なった。計算で得られた溶解曲線を図-5, 6, 9, 10 の点線で示す。なお、解析にあたり、溶解速度は、実験で得た溶解速度を溶解温度と溶解液中の遊離硝酸濃度の関数として表わされる近似式を用いた。

UO<sub>2</sub> ペレットについての計算結果は、実験による溶解曲線と実用上、ほぼ満足出来る範囲で一致した。P-1, P-2 の差は溶解率に対する表面積遷移の精度、あるいは溶解速度の近似式の精度によるものであろう。剪断 UO<sub>2</sub> ペレットについての計算結果は J-1, J-2 について粉末化した UO<sub>2</sub> ペレットを 30% とした場合、実験結果とよく一致した。

以上の結果から、少なくとも UO<sub>2</sub> ペレットあるいは剪断ペレットについて、1 回の溶解経験が

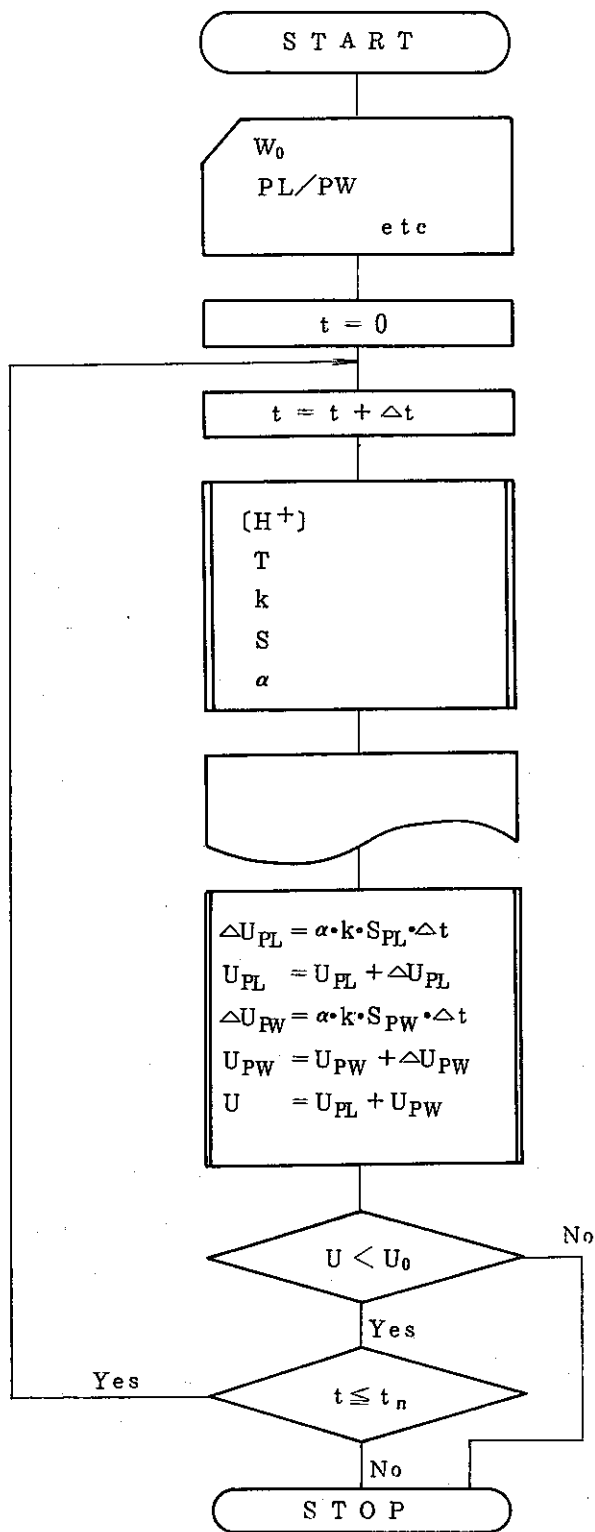


図-14 溶解過程解析コード DISSO のフローチャート

らだけでも、溶解条件をかえた場合の溶解過程が、実用上、満足出来る精度で推定できると思われる。

### 3.3 主工場の溶解過程シミュレーション

本報告で使用したDISSOは溶解速度の温度および遊離硝酸濃度依存、溶解率に対する $UO_2$ の表面積遷移および溶解したウランの $UO_2$ 溶解に対する自触媒効果という単純な溶解過程モデルをもとにしているが、 $UO_2$ ペレットおよび剪断 $UO_2$ ペレットの溶解過程に関して、実用的見地からみれば、十分満足のいくシミュレーション結果がえられた。

そこで、図-15に示した溶解槽を使用して行こなわれた主工場でのホット試験の溶解工程のシミュレーションをDISSOにより行ない、その計算結果を図-16,17に点線で示した。

溶解された剪断燃料の仕様を表-7に示す。

計算結果は、ホット試験で得られた溶解曲線のうち、クリプトンモニターの測定値から推定された溶解曲線とほぼ満足出来る範囲で一致した。

表-7 剪断燃料仕様

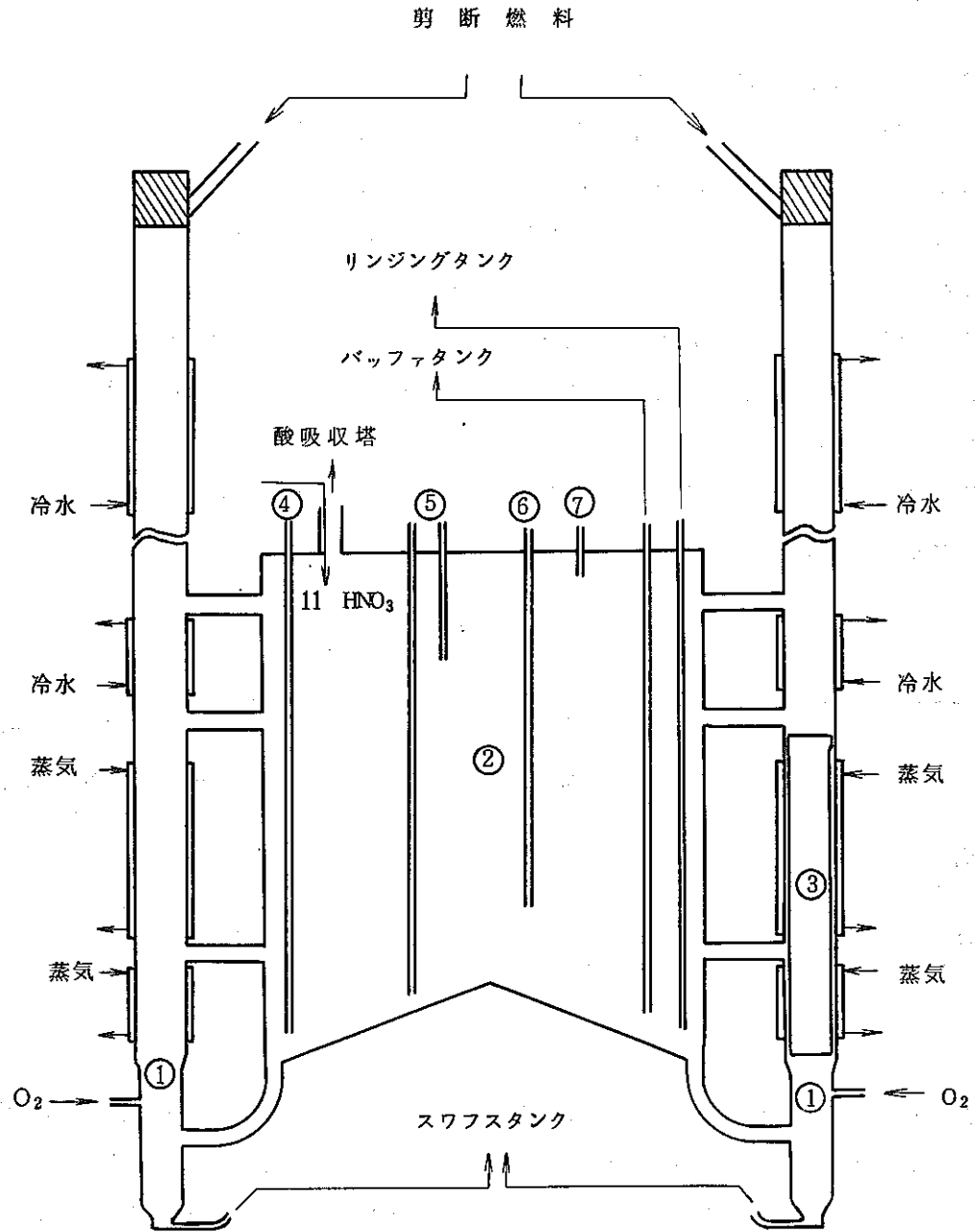
	剪断長さ (cm)	平均燃焼度 (MWD/MTU)	燃料集合体 No.	装 荷 量	
				U (Ukg)	Pu (Pukg)
BWR-009	44	10.158	TX-256	384.820*	1.845*
		10.176	TX-356		
PWR-014	375	19.469	A-04	391.646	2.843

\* TX-256とTX-356の合計

両者の差は、小型試験設備と主工場の溶解槽の装置特性および運転方法の差、JPDR、BWRおよびPWRの各燃料の製造条件、照射条件、剪断長さなどの差に起因すると考えられる初期表面積の差、溶解率に対する表面積遷移の差および溶解速度の近似式の精度などによるものであろう。

主工場の溶解工程においては、最初純水を溶解槽に注入し、加温した後、硝酸を溶解槽に供給する方法を採用しているため、計算結果によれば溶解曲線は硝酸の供給速度（溶解液中の遊離硝酸濃度）による影響を最も強く受け、溶解工程初期に遊離硝酸濃度が低い主工場の溶解工程について剪断燃料中の粉末化された $UO_2$ の比率の影響は小さい。しかし、最初から溶解槽へ硝酸を全量注入する小型試験設備の溶解工程については粉末化された $UO_2$ の比率の影響は大きい。

以上の結果から、小型試験の溶解工程モデルをそのまま適用しても、硝酸供給速度および溶解槽の加熱条件をかえた場合の主工場の溶解過程が、実用上、ほぼ満足できる精度で推定できるものと考えられる。



- |   |           |   |     |
|---|-----------|---|-----|
| ① | 溶解槽       | ⑤ | 液面計 |
| ② | スラブタンク    | ⑥ | 温度計 |
| ③ | バスケット     | ⑦ | 温度計 |
| ④ | リサイクル用パイプ |   |     |

図-15 主工場溶解槽

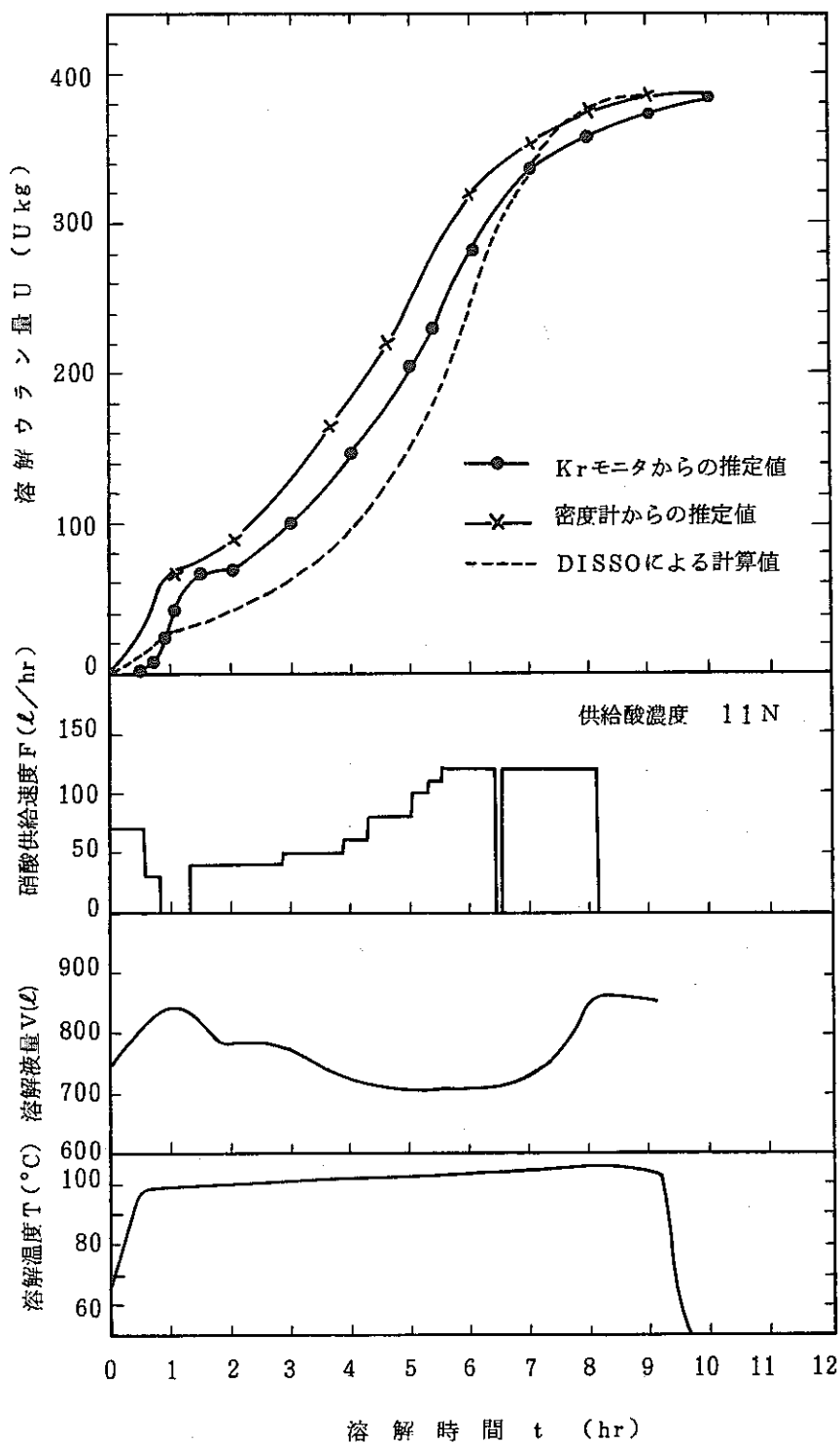


図-16 BWR 剪断燃料の溶解曲線 (BWR-009)

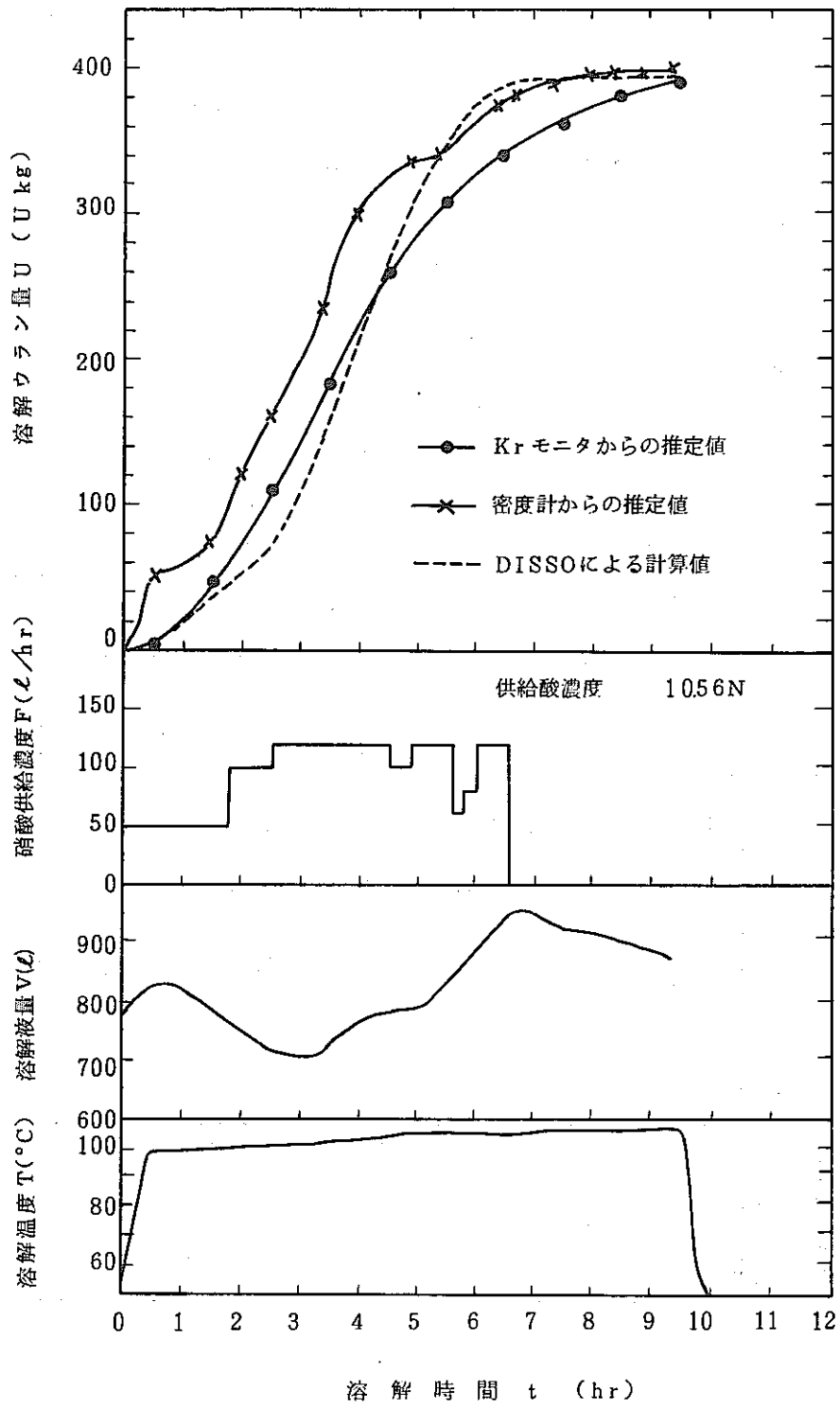


図-17 PWR 剪断燃料の溶解曲線 (PWR-014)

## 4. あ と が き

一般的に、使用済燃料の溶解工程における溶解過程は、取扱う燃料の性質上、すなわち、放射能、製造条件、燃焼度、剪断条件および形状等によって、明解な溶解モデルをもちいて推察することは困難である。したがって、本報告で行なったように、経験的に得られる表面積遷移を知って、これをその他溶解速度等の溶解条件と組合せて、新たな溶解工程の溶解過程を推察するのが、最も妥当であると思われる。本報告での結果から、本報告は実用的に充分活用できるといえよう。

## 5. 謝 辞

溶解過程のシミュレーションに、一部主工場の溶解データを使用した。主工場の溶解データは、再処理建設所処理部化学処理第1課より提供を受けた。化学処理第1課に感謝する。

## 6. 参 考 文 献

- (1) 権田浩三, 根本 剛, 角田林一, 安 正三, 宮地茂彦: 「再処理運転員のための溶解工程考察」(6月, 1976), (未発表)
- (2) A. L. Uriate, R. H. Rainey: DISSOLUTION of HIGH-DENSITY  $UO_2$ ,  $PuO_2$ , and  $UO_2 - PuO_2$  PELLETS in INORGANIC ACIDS, ORNL - 3695, (April, 1965)
- (3) R. F. Taylor, E. W. Sharratt, L. E. M. de Chazal and D. H. Logsdail: DISSOLUTION RATES of URANIUM DIOXIDE SINTERED PELLETS in NITRIC ACID SYSTEMS, J. appl. Chem, 13, (January, 1963)
- (4) 権田 三, 根本 剛, 安 正三, 宮地茂彦: 「小型試験設備機器機能試験(I)」(2月, 1976) (未発表)
- (5) B. C. Finney, B. A. Hannaford, G. A. West, C. D. Watson: SHEAR - LEACH PROCESS, ORNL - 3984 (July, 1969)